



## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

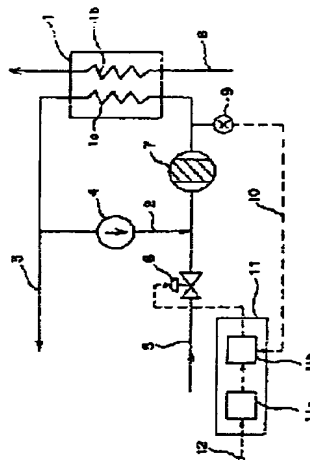
(11) Publication number: **02087479 A**(43) Date of publication of application: **28.03.90**(51) Int. Cl. **H01M 8/04**(21) Application number: **63239047**(71) Applicant: **TOSHIBA CORP**(22) Date of filing: **26.09.88**(72) Inventor: **AMAMIYA TAKASHI****(54) FUEL CELL POWER GENERATION SYSTEM****(57) Abstract:**

**PURPOSE:** To prevent the impurity density from exceeding a specific tolerance level by providing an impurity removing device to reduce the impurity density of the fuel to feed to a fuel cell, and a control device to output the opening direction to make the fuel flow at a flow control valve responding to the loading instruction and the impurity density in the fuel.

**CONSTITUTION:** When a condition that the impurity density in the fuel at the entrance of a fuel electrode 1a exceeds a normal level is generated, a control device 11 corrects and controls a fuel flow regulating valve 6 to increase the feeding fuel flow responding to the level of the impurity density. In other words, since the impurity density signal 10 is output from an impurity density sensor 9, and it is input to the second operation unit 11b, the signal from the first operation unit 11a is corrected to increase the fuel flow to feed responding to the level of the impurity density, and the fuel flow regulating valve 6 is controlled by the corrected signal. As a result, the impurity amount to be circulated to the fuel electrode 1a is reduced. Therefore, the impurity density in the fuel at the

entrance of the fuel electrode 1a is made lower, and reduced lower than a normal tolerance level soon.

COPYRIGHT: (C)1990,JPO&Japio



⑨ 日本国特許庁(JP)

⑩ 特許出願公開

⑪ 公開特許公報(A) 平2-87479

⑫ Int.Cl.<sup>5</sup>

識別記号

庁内整理番号

⑬ 公開 平成2年(1990)3月28日

H 01 M 8/04

J

7623-5H

審査請求 未請求 請求項の数 1 (全7頁)

⑭ 発明の名称 燃料電池発電システム

⑮ 特 願 昭63-239047

⑯ 出 願 昭63(1988)9月26日

⑰ 発 明 者 雨 宮 隆 東京都港区芝浦1丁目1番1号 株式会社東芝本社事務所内

⑱ 出 願 人 株 式 会 社 東 芝 神奈川県川崎市幸区堀川町72番地

⑲ 代 理 人 弁 理 士 猪 股 祥 晃 外1名

明 細 書

1. 発明の名称

燃料電池発電システム

2. 特許請求の範囲

電解質層を挟んで燃料極および酸化剤極の一対の電極を配置すると共に、前記燃料極には燃料を供給し前記酸化剤極には酸化剤を供給し、このとき起こる電気化学的反応により前記両電極間から電気エネルギーを取り出す燃料電池と、この燃料電池の前記燃料極の出口側ラインを介して排出される排気燃料の一部を分岐し、再循環ブローを介して前記燃料極の入口側ラインへ再循環させるように構成された再循環ラインと、前記燃料電池に供給する前記燃料中の不純物濃度を低減させるための不純物除去装置と、前記燃料電池の燃料流量を調節する流量調節弁と、この流量調節弁の燃料流量が、負荷指令と前記燃料中の不純物濃度に対応したものとなるような開度信号を出力する制御装置とから構成したことを特徴とする燃料電池発電システム。

3. 発明の詳細な説明

[発明の目的]

(産業上の利用分野)

本発明は、燃料発電システムに係り、特に燃料中の不純物に起因する燃料電池の特性劣化を防止するようにした構成に関するものである。

(従来の技術)

近年、燃料の有しているエネルギーを直接電気的エネルギーに変換するシステムとして、燃料電池発電システムが知られている。この燃料電池発電システムは、通常、電解質を挟んで一対の多孔質電極を配置して燃料電池を構成するとともに、一方の電極である燃料極の背面に水素リッチガスなどの燃料を接触させ、他方の電極である酸化剤極の背面に空気などの酸化剤を接触させ、このとき起こる電気化学的反応を利用して上記電極間から電気エネルギーを取り出すようにしたものであり、上記燃料と酸化剤が供給されている限り高い変換効率で電気エネルギーを取り出すことができるようにしたものである。

ところが、従来、この種の燃料電池発電システムにおいて、燃料とする上記水素リッチガスは、メタンまたはそれ以上の重炭化水素を含む化石燃料を原料ガスとし、これを水蒸気改質することにより得ることが行われている。

また、水素リッチガスを得る他の有力な手段としては、塩水電解によるソーダ製造工程等における副産物として得られる副生水素ガスの利用があげられる。このような電解化学工程で得られる副生水素ガスは、水素の純度が一般に99%以上と高いため、燃料電池の燃料ガスとしても極めて有用性が高いと考えられている。

(発明が解決しようとする課題)

しかしながら、上記したような副生水素ガスは、化石燃料の水蒸気改質により得られる水素リッチガスと異なり、不純物として微量のアンモニア ( $\text{NH}_3$ ) を含有していることがある。現在実用性が高い燃料電池の代表的なタイプであるリン酸型燃料電池においては、燃料中に含まれる微量の不純物であるアンモニアは、電池電解質のリン酸

と化合してリン酸塩を生成し、電池反応の正常な進行を妨げることから、電池特性の長期的劣化をもたらすものとされている。このため、燃料中に含まれるアンモニアの許容上限濃度は、一般に1 ppm 以下のレベルである。

したがって、以上述べたような副生水素ガスを燃料として用いるリン酸型燃料電池においては、燃料極入口で燃料中に含まれるアンモニア濃度を上記した限度を越えないように運転することが必要となり、このための構成が不可欠となる。

一方、一般に燃料電池発電システムにおいては、燃料を効率的に消費して発電コストを低減させる必要があり、このために燃料極に再循環ラインを設け、燃料極から排出される排気燃料の一部を入口側ラインへ再循環させるようにすることが多い。ところが、このよう燃料電池発電システムにおいて、もし原燃料中に燃料電池に有害な不純物(例えば上記したアンモニア)が微量でも含まれていると、この不純物の濃度は、燃料極の再循環ラインを循環する間に増大し、ついには燃料極の入口

で燃料電池性能上許容できないレベルに達することが予想される。このような状況になると、燃料電池運転を継続することはできない。

また、燃料中に含まれる水素以外の不純物(例えば  $\text{CO}_2$  等のように電池反応に関与しない成分)で必ずしも燃料電池に直接有害となるものでなくとも、再循環ラインを循環する間に不純物濃度が上昇すれば、燃料極に供給される燃料中の水素ガス分圧が低下するから、燃料電池の出力電圧が低下して十分な電気出力を得られなくなる。

したがって、以上述べたような燃料極入口での不純物濃度の増大を防ぐためには、燃料極の再循環流量を小さくして燃料極出口の排気燃料のうちできるだけ多くの量を系外に排出してしまうことも考えられるが、これは燃料の効率的な使用を犠牲にすることになり、結果的に燃料電池発電システムの効率が低下し、発電コストを上昇させてしまうことになる。

そこで、本発明の目的は、燃料利用効率が高かつ燃料極入口での燃料中の不純物濃度を一定の

許容レベルを超えないようにすることを可能とした燃料電池発電システムを提供することにある。

[発明の構成]

(課題を解決するための手段)

本発明は、電解質層を挟んで燃料極および酸化剤極の一对の電極を配置するとともに、燃料極には燃料を供給し酸化剤極には酸化剤を供給し、このとき起こる電気化学的反応により両電極間から電気エネルギーを取り出す燃料電池と、この燃料電池の燃料極の出口側ラインを介して排出される排気燃料の一部を分岐し、再循環させるように構成された再循環ラインと、燃料電池に供給する燃料中の不純物濃度を低減させるための不純物除去装置と、燃料電池の燃料流量を調節する流量調節弁と、この流量調節弁の燃料流量が負荷指令と燃料中の不純物濃度に対応したものとなるような開度指令を出力する制御装置とから構成したものである。

(作用)

不純物除去装置は、燃料電池の燃料極入口に供

給される燃料中の不純物を除去し、不純物濃度を低減させるようにするので、この不純物除去装置の機能を適切に選択すれば不純物濃度をある一定の許容レベル以下に抑えることができる。

また、制御装置は、通常運転時は負荷指令に応じて燃料が供給されるように燃料流量調節弁の開度を制御するが、必要に応じて燃料中の不純物濃度レベルを、燃料流量制御の修正信号として用いるように作用する。これにより、何らかの原因で燃料極入口における燃料中の不純物濃度が通常の許容レベルを超えてしまう場合には、その不純物濃度に応じて燃料流量を増加させ、燃料極入口における不純物濃度を低減させることができる。したがって、如何なる場合においても、燃料電池入口における不純物濃度レベルを常にある一定の許容レベル以下に保つことができ、燃料電池特性への悪影響を除くことができる。

#### (実施例)

以下、本発明の一実施例を図面を参照して説明する。第1図は本発明の一実施例を示す構成図で

の不純物濃度センサ9から得られる不純物濃度信号10を燃料流量制御の修正信号として用いる制御装置11を設ける。この制御装置11は、負荷指令12に応じて予め決められた関数演算を行い、燃料電池1に供給すべき燃料流量の目標値信号を得る第1の演算器11aと、この第1の演算器11aで得られた目標値信号を上記した不純物濃度信号10により修正し、さらに燃料流量調節弁6の開度信号に変換調整する第2の演算器11bを備えている。なお、第1の演算器11aと第2の演算器11bは、必ずしも分離する必要はなく、一体化された1個の演算器で同様の信号処理を行うようにしてもよい。

次に、上述した実施例の作用を説明する。

いま、燃料電池1に燃料供給ライン5からある不純物濃度をもつ水素リッチガスを供給して発電運転を行う場合を考える。燃料極1aにおいては、燃料電池の負電流に応じて燃料中の水素を消費するので、燃料極1a出口における燃料排ガス中の不純物濃度は、燃料極1a入口より増大する。燃料排ガス中の残存水素分を有効利用するため、そ

ある。

同図において、1は、電解質層を挟んで燃料極1aおよび酸化剤極1bからなる一対の電極を配置し、燃料極1aに燃料を供給するとともに酸化剤極1bに酸化剤を供給したときに発生する電気化学的反応により両電極間から電気エネルギーを取り出す燃料電池、2は燃料極1aの出口側に接続される排燃料排出ライン3を介して排出される排気燃料の一部を分岐し、再循環フロア4を介して燃料極1aの入口側へ再循環させる再循環ライン、5は燃料供給ライン、6は燃料供給ライン5に接続される燃料流量調節弁、7は燃料供給ライン5に接続され、燃料中の不純物濃度を低減させるための不純物除去装置、8は酸化剤供給ラインである。ここで、不純物除去装置7は、燃料中に含まれる除去成分によって選択するが、例えば除去成分がイオウ分や塩素分であれば活性炭もしくは触媒層を充填したものが用いられる。

また、燃料極1aの入口側には、燃料中の不純物濃度を測定する不純物濃度センサ9を設け、こ

の一部分を再循環フロア4を介して燃料極1a入口ラインへ再循環させる。このために高濃度の不純物を含む燃料が燃料極1a入口側に再循環されることになる。しかしながら、燃料極1aの入口側には不純物除去装置7が設けられており、この不純物除去装置7を燃料が通過する間に燃料中の不純物の一部が除去されるので、結果として燃料極1aの入口に供給される燃料中の不純物濃度を低減することができる。したがって、不純物除去装置7の性能を適切に選択すれば、通常の運転状態において常に燃料極1a入口に供給される燃料中の不純物濃度を、電池特性に悪影響を与えないようなある許容レベル以下に抑えることができる。

しかしながら、もし何らかの原因により、燃料極1a入口における燃料中の不純物濃度が通常レベルを超えるような状態が発生した場合、制御装置11は、その不純物濃度のレベルに応じて供給する燃料流量を増加させるように燃料流量調節弁6を修正制御する。すなわち、通常の運転状態においては、制御装置11は、燃料電池の負荷指令12に

応じて供給すべき燃料流量の設定値を定め、これに応じて燃料流量調節弁6の開度信号を出力し、燃料流量調節弁6を制御しているが、燃料極1a入口における燃料中の不純物濃度が通常のレベルを超えた場合には、不純物濃度センサ9から不純物濃度信号10が出力されてこれが第2の演算器11bに入力されるので、第1の演算器11aからの信号をその不純物濃度のレベルに応じて供給すべき燃料流量を増加させるように修正し、この修正した信号で燃料流量調節弁6を制御する。

このようにすれば、燃料極1aで消費される水素量が一定燃料電池負荷のもとでは変化しないことを考えると、排燃料排出ライン3より排出されるガス量は、供給する燃料量の増加と同量だけで増える。この排出ガス中の不純物濃度は、一般に供給する燃料中の不純物濃度より高くなるので、排出される不純物量が供給する燃料中に含まれる不純物量より大きくなり、結局、燃料極1aに循環される不純物量が減少していく。つまり、燃料極1a入口における燃料中の不純物濃度が低下し

ていき、やがて通常の許容レベル以下になる。この状態で増加した燃料を供給し続けると、供給する燃料に対する発電効率が通常より低下し不利となるので、供給する燃料量は、不純物濃度の低下に伴って減少させていき、通常の負荷指令に応じた燃料量まで低減させればよい。以上の説明から明らかなように、燃料極1a入口で検出した不純物濃度信号10を、供給すべき燃料流量設定の修正信号として用いることは、作用上極めて有利である。

なお、上述したような燃料極1a入口における燃料中の不純物濃度が通常のレベルを超えるような状態は、例えば、不純物除去装置7の機能が低した場合や、供給する燃料中の不純物濃度が何らかの原因で上昇した場合等が考えられる。

また、上述した実施例における供給する燃料は、その一例として塩水電解によるソーダ製造工程等の副産物として得られる副生水素ガスがあげられる。このような電解化学工程で得られる副生水素ガスは、水素の濃度が一般に99%以上と高いため、

燃料電池の燃料としても極めて有用性が高いと考えられている。ただし、この場合燃料中の問題となる不純物の例として、アンモニア( $\text{NH}_3$ )分を考えることができる。リン酸型燃料電池において、電池特性に影響を与えないようなアンモニア分の燃料極入口における許容限界濃度は、一般に1ppmのレベルとされている。燃料中のアンモニア分を除去する装置は、その一例として直接接触式熱交換器があり、燃料極入口ガスの冷却を兼ねて冷却水によりアンモニアを除去する方式が考えられる。

従って、この実施例は、次のような効果を得ることができる。すなわち、不純物除去装置と不純物濃度信号の入力によって燃料流量調節弁6の開度信号を修正する制御装置の作用により、如何なる場合においても燃料極入口における燃料中の不純物濃度を、一定の許容レベルを超えないようにすることが可能となり、不純物濃度に起因する電池特性への悪影響を除き、燃料極の再循環量を大きくすることができるので、燃料利用率が高い、

すなわち、発電効率の高い燃料電池発電プラントを提供することができる。

なお、本発明は、上述した実施例(以下、第1の実施例という)に限定されるものではなく、種々変形実施できる。

すなわち、第2図は上述した第1の実施例と異なる他の実施例(以下、第2の実施例という)を示す構成図である。なお、第1図と同一部分には同符号を付し、その説明を省略する。

第2の実施例は、燃料極1a入口に不純物濃度センサを設けないことが第1の実施例と相異なる点であり、不純物濃度信号を供給する燃料流量の修正信号として用いる代りに、燃料中の不純物濃度の推定値信号15を制御装置11の第2の演算器11bに入力し、燃料流量調節弁6の開度信号を負荷指令12に応じて決める際の修正信号として用いることを特徴とするものである。

例えば、供給する水素リッチガス中の不純物濃度が時間的に変動するような燃料電池発電システムにおいて、予めこの不純物濃度が推定できる場

合は、この不純物濃度の推定信号を手動設定、タイムスケジュールによる自動設定またはその他の何らかの条件を用いた演算結果による設定等により設定し、制御装置11に入力するように構成する。

また、例えば、不純物除去装置7の機能低下が何らかの手段により検出もしくは推定できる場合においても、燃料極1a入口の不純物濃度の推定レベルを信号として制御装置11に入力し、上述と同様に供給する燃料流量の修正信号として用いることができる。

したがって、第2の実施例でも第1の実施例と同様の効果を得ることができる。

第3図は、上述した第1および第2の各実施例とさらに異なる他の実施例（以下、第3の実施例という）を示す構成図である。なお、第1図と同一部分には同符号を付し、その説明を省略する。

第3の実施例は、不純物除去装置7を燃料極1a入口側ではなく、燃料供給ライン5（燃料流量調節弁6の上流側）に設けたことが、第2の実施例と相違する点である。

する。

第4の実施例は、燃料極1a入口に不純物濃度センサ9を設けないことが第3の実施例と相違する点であり、不純物濃度信号を供給する燃料流量の修正信号として用いる代りに、燃料中の不純物濃度の推定信号15を制御装置11の第2の演算器11bに入力し、燃料流量調節弁6の開度信号を負荷指令12に応じて決める際の修正信号として用いることを特徴とするものである。この特徴は、第2の実施例にも共通する。

第4の実施例の作用は、第3の実施例の場合とほぼ同様である。ただし、供給する燃料中の不純物濃度信号を用いず、推定値信号をもって供給する燃料流量の修正制御を行う点が異なる。

したがって、第4の実施例でも第3の実施例と同様の効果を得ることができる。

第5図は、上述した第1、第2、第3および第4の各実施例とさらに異なる他の実施例（以下、第5の実施例という）を示す構成図である。なお、第1図乃至第4図と同一部分には同符号を付し、

第3の実施例の作用は、第1の実施例の場合の作用と同様である。すなわち、もし、何らかの原因により、燃料極1a入口における燃料中の不純物濃度が通常のレベルを超えるような状態が発生した場合、制御装置11は、その不純物濃度のレベルに応じて供給する燃料流量を増加させるように燃料流量調節弁6を修正制御をする。

このようにすれば、排燃料排出ライン3の排ガスに含まれて排出される不純物量は、不純物除去装置7を経た後流側の燃料中に含まれる不純物量より多くなり、結局燃料極1aに循環される不純物量が減少していく。すなわち、燃料極1a入口における燃料中の不純物濃度は、次第に低下していき、やがて通常の許容レベル以下になる。

したがって、第3の実施例でも第1の実施例と同様の効果を得ることができる。

第4図は、上述した第1、第2および第3の各実施例とさらに異なる他の実施例（以下、第4の実施例という）を示す構成図である。なお、第2図と同一部分には同符号を付し、その説明を省略

その説明を省略する。

第5の実施例は、第4の実施例における燃料中の不純物除去装置7として、直接接式熱交換器16を適用した構成を示したものである。この第5の実施例の場合、燃料供給ライン5から供給される燃料は、塩水分解によるソーダ製造工程等の副産物として得られる副生水素ガスを想定すればよく、また、ここで除去すべき燃料中の不純物としてはアンモニア分を想定すればよい。直接接式熱交換器7aでは、ポンプ16で圧力を付加された冷却水がノズル17から噴出され、燃料供給ライン5から供給される水素ガス燃料を冷却すると共に、不純物として含まれているアンモニア分を水に溶解させる。冷却水は、直接接式熱交換器7aの下部より抽出され、冷却器18を経て再びポンプ16で圧力を負荷されるループを循環する。また、この間アンモニア分を含んだ冷却水の一部は、水質処理装置19に分岐され、アンモニア分を除去された後、再び冷却水循環ループに返される。

したがって、第5の実施例も構成要素としては、

本質的に第4の実施例と同様であり、得られる効果も第4の実施例と同様である。

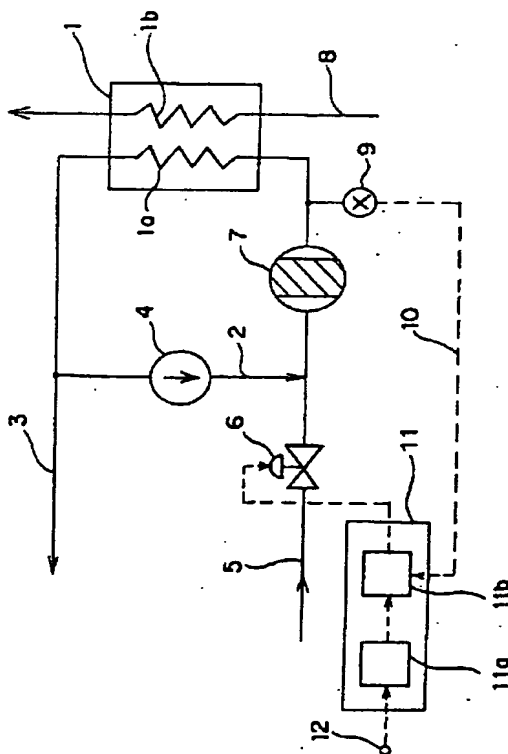
〔発明の効果〕

以上説明したように本発明によれば、不純物除去装置と燃料流量の修正信号を出力する制御装置の作用により、いかなる場合においても燃料極入口における燃料中の不純物濃度を、一定の許容レベルを超えないようにすることが可能となり、不純物濃度に起因する電池特性への悪影響を除去することができ、また、燃料極の再循環量を大きくすることもできる。したがって、燃料利用率を高くして発電効率を向上した燃料電池発電プラントを提供することができる。

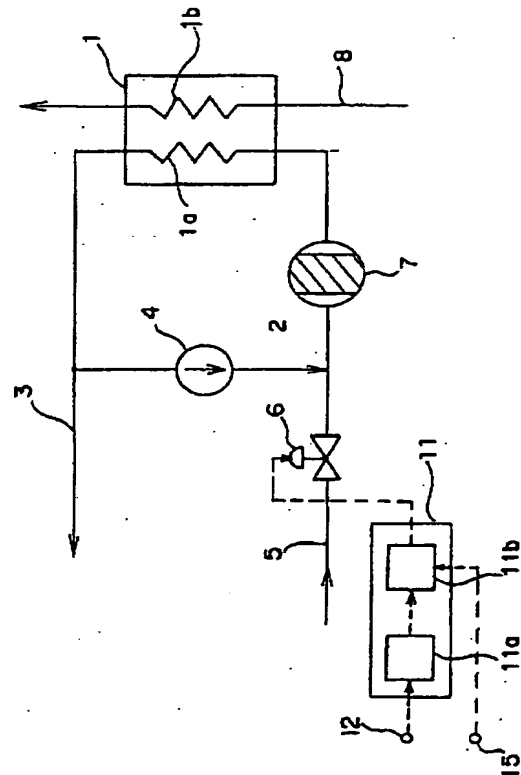
4. 図面の簡単な説明

第1図は本発明の一実施例を示す構成図、第2図は本発明の他の実施例を示す構成図、第3図は本発明のさらに異なる他の実施例を示す構成図、第4図は本発明のさらに異なる他の実施例を示す構成図、第5図は本発明のさらに異なる他の実施例を示す構成図である。

- 1…燃料電池
- 1a…燃料極
- 1b…酸化剤極
- 2…再循環ライン
- 3…排燃料排出ライン
- 5…燃料供給ライン
- 6…燃料流量調節弁
- 7…不純物除去装置
- 9…不純物濃度センサ
- 11…制御装置
- 12…負荷指令
- 15…不純物濃度の推定値信号

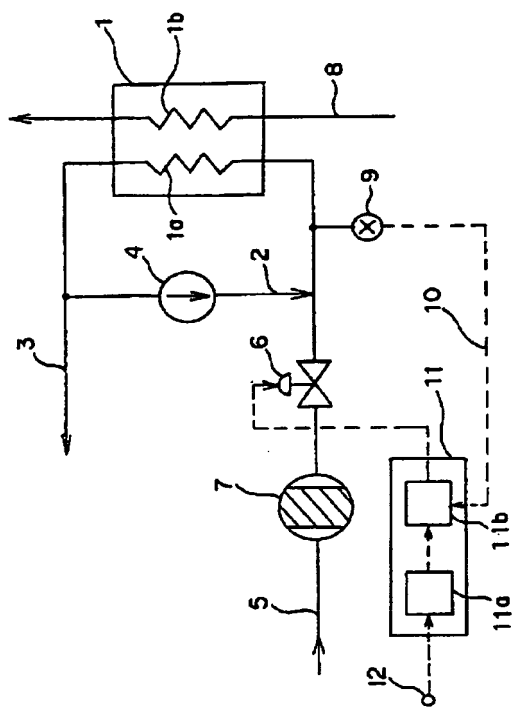


第1図

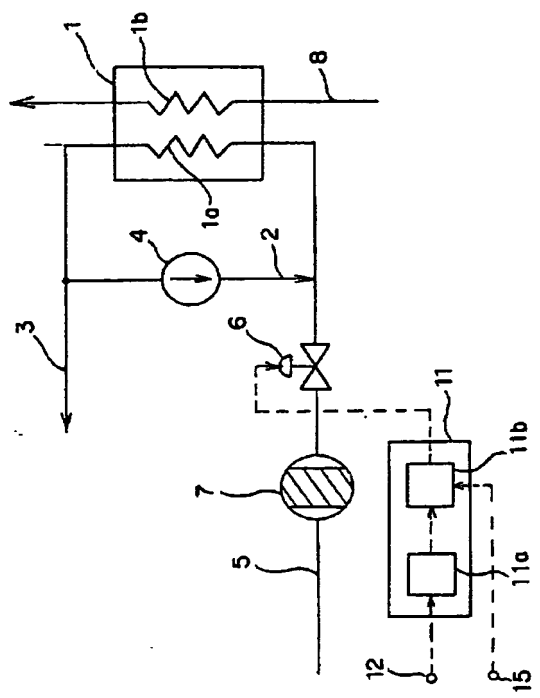


第2図

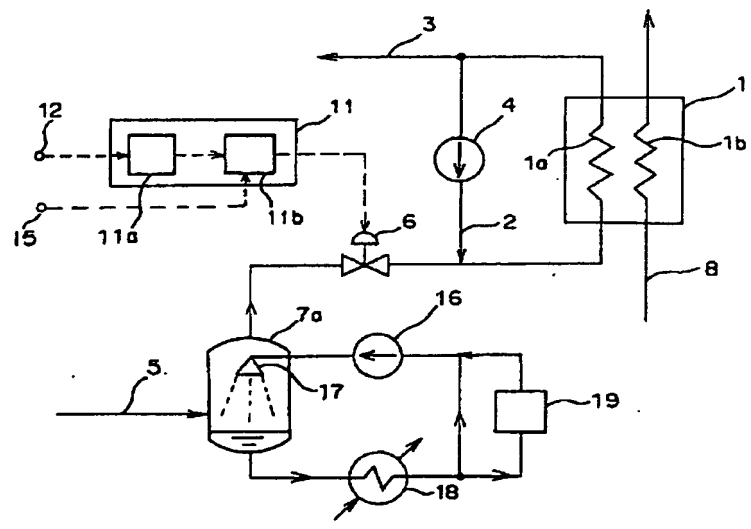
(8733) 代理人 弁理士 猪 股 祥 晃  
(ほか 1名)



第 3 図



第 4 図



第 5 図